



TITLE:

液晶での巨視秩序形成過程における揺動の挙動とその分布(秩序形成の初期過程におけるスケーリング則と非平衡熱力学,研究会報告)

AUTHOR(S):

甲斐, 昌一

---

CITATION:

甲斐, 昌一. 液晶での巨視秩序形成過程における揺動の挙動とその分布(秩序形成の初期過程におけるスケーリング則と非平衡熱力学,研究会報告). 物性研究 1985, 43(5): 225-232

ISSUE DATE:

1985-02-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/91511>

RIGHT:

液晶での巨視秩序形成過程における揺動の挙動とその分布

九工大 甲斐昌一

§1. はじめに

液晶の電気流体力学的あるいは、電氣的発振不安定性における macrodynamics は、 $\varepsilon$  の小さい領域で次のような式で近似できる<sup>1)</sup>

$$\dot{y} = ay - by^3 + \nabla^2 y \quad \text{--- (1)}$$

ここで  $y$  は director angle で、ホモジニアス配列液晶セルを使用した場合には、電極面とのなす角度で定義される。また、 $y$  は本来空間的周期構造を呈する。ある閾値周波数  $f_c$  以下では空間電荷が外力に十分の速さで応答でき、これが振動モードとなることによって、director angle は非振動モードとなり、定常ではある周期構造をもった巨視秩序を形成する。一方  $f_c$  以上では空間電荷の緩和が外力に応答できず、このために director angle の振動が空間電荷の蓄積とともに発達する。したがって、 $f_c$  以下では director angle が非振動モードの巨視秩序を形成し、一方  $f_c$  以上では、空間電荷の蓄積量が非振動モードの巨視秩序となる。後者の場合には、これは直接観測できず、director の振動振幅の発達として観測される。いずれの場合も macrodynamics は (1) 式に従う。また外部の電氣的雑音を加えると multiplicative stochastic process となり<sup>2)</sup>、(1) 式は

$$\dot{y} = \alpha y - by^3 + \nabla^2 y + \xi \cdot y + \eta(t) \quad \text{--- (2)}$$

となる。ここで  $\alpha$  は外部雑音の trivial part  $\xi^2$  を含むために、(1) 式の  $a$  の値とは異なってくる。また  $\eta(t)$  は熱雑音である。このような系での  $f_c$  以下の形成時間の雑音や波数依存性については既に報告<sup>3)</sup>したので、ここでは主に、 $f_c$  以上での巨視秩序の形成過程における平均運動のまわりの揺動の分布と分散の時間発展の様子と報告する。

§2. 空間電荷の発達と揺動

$f_c$  以上では、図1に示すような揺動が光学的に観測される。これは WD ロール構造の形

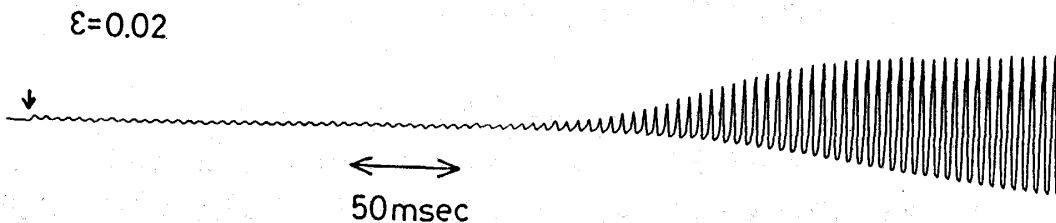


図1. director の発振と不均一な空間電荷の成長

成と同様に、わずかの不均一性から巨視的な空間電荷の周期構造が形成されるために生じるもので、これが振動している director の振幅を成長させる。(注意すべきことは、この発達の envelop は発振モードの発達ではなく、静止モードである空間電荷の蓄積量の発達である。これは実験的に確認されている。) この蓄積量と director の角度 (peak to peak) は比例している。また、光学的に観測される量は director angle の 2 乗となっているが、図 2 以下では実験結果は全て、空間電荷量あるいは director angle の振幅すなわちオーダパラメータ  $y$  に直接相当するように再整理を行なっている。 $y$  あるいは  $\varepsilon$  が大きいところではさらに複雑な関係となるため、ここでは  $\varepsilon$  の非常に小さいところのみを対象として議論する。

図 2 は、 $\varepsilon = 0.098$  までステップ状に外力を増加させた場合の  $y$  の時間発展と揺動  $\sigma$  の

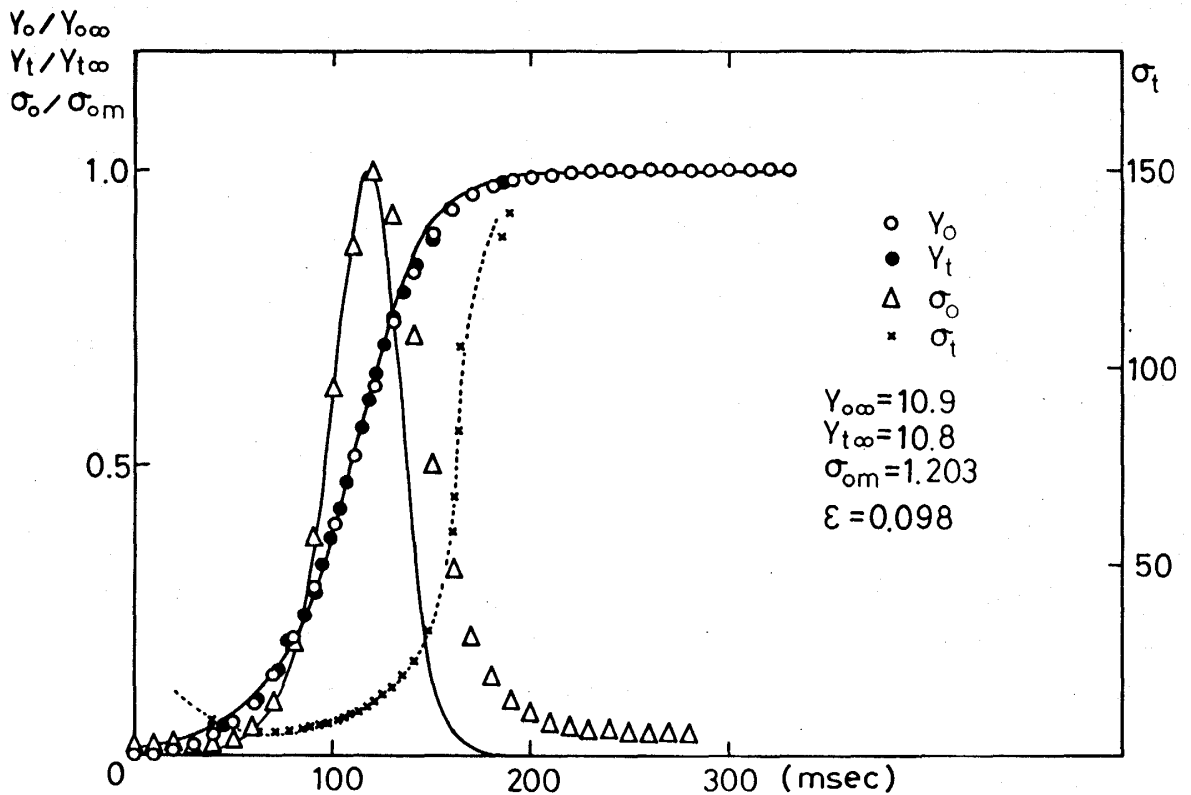


図 2. 平均運動  $y_0$ ,  $y_t$  と分散  $\sigma_0$ ,  $\sigma_t$  の時間変化

実線は  $y$  に対して (1) 式,  $\sigma$  に対してはスターリング  
理論より得られる  $\sigma$  の変化を示す。

時間変化を示す。ここで  $y$  は most probable path であり、 $y_0$  は平均化をしたが一定のもとで、一方、 $y_t$  は  $y$  が一定のもとで行なわれているが、双方とも most probable path は全く同一の時間発展を示す。図中実線は  $\dot{y} = ay - by^3$  の曲線を表わす。実験値は完全に曲線上に載っており、非常によい近似式であることがわかる。

一方  $\sigma$ ,  $\sigma_t$  は上記の各々での統計的な分散値で、

$$\left. \begin{aligned} \sigma_o(t) &= \frac{1}{N} \sum_i^N (y_o - y_i)^2, & t \text{ は 固定} \\ \sigma_x(y) &= \frac{1}{N} \sum_i^N (t_o - t_i)^2, & y \text{ は 固定} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

で与えられる。すなわち、 $\sigma_o$ はある時間 $t$ での $y$ のバラツキと、一方 $\sigma_x$ はある値 $y_x$ を示す $t$ のバラツキを意味する。 $\sigma_o(t)$ は $t=t_m$ で最大を示し、定常に向うとともに再び減少する。実線は鈴木理論を示す<sup>4)</sup>。 $t > t_m$ では、理論との一致は悪くなり、その差は終期になるほど大きくなる。一方、 $\sigma_x(y_x)$ は初期には大きく、50 msec ~ 120 msecの領域ではほぼ一定となり、 $t \rightarrow t_m$ 近傍から再び急激に大きく成長するようになる。スケーリング理論では、 $\sigma_x(y_x)$ が一定であることが要請される。したがって、 $t > t_m$ で $\sigma_x$ が急激に変化することと $\sigma_o(t)$ が理論からはずれることは矛盾しない。現在のところ終期過程に対するスケーリング理論には改良の余地があるように思える（この $\sigma_x(y_x)$ については本研究会で指摘されたもので、この稿をまとめるにあたり、実験データの再整理を行なった）。なお、14%の外

図3 (a).  $\sigma_o$ の外部雑音強度( $Q$ )依存性

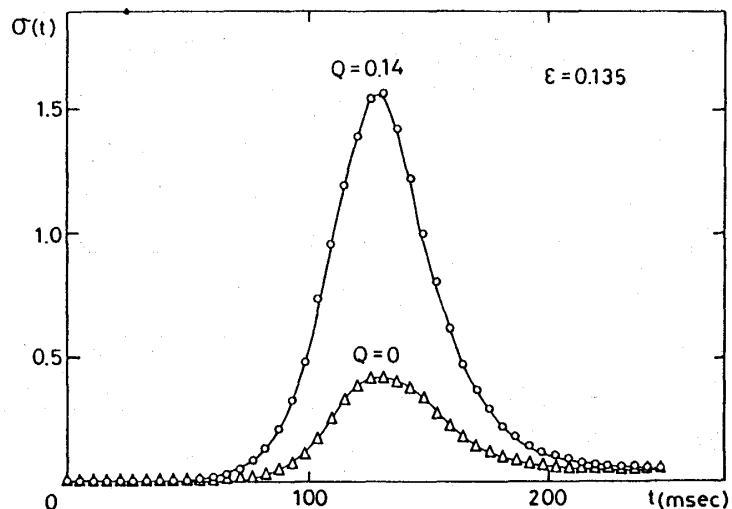
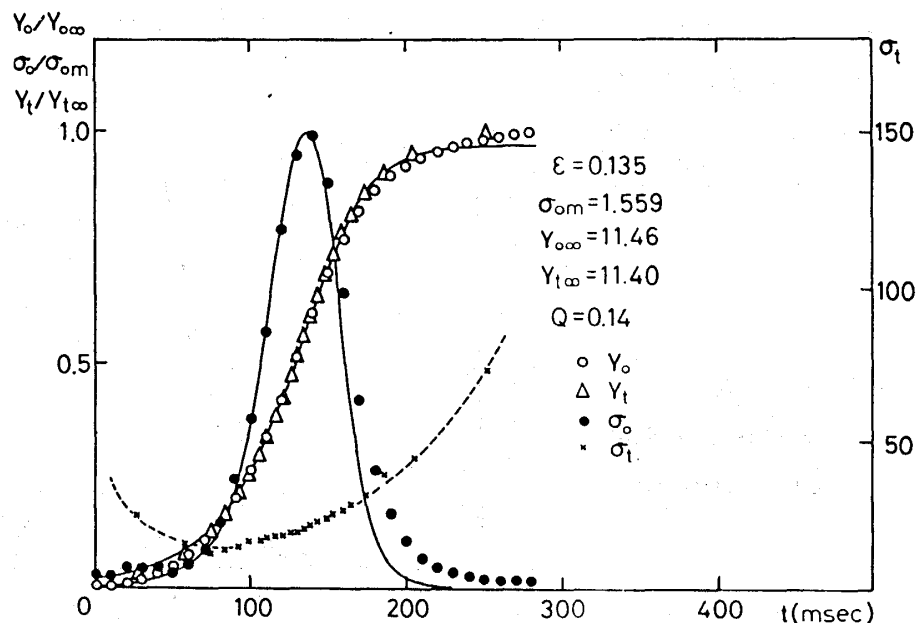


図3 (b).  
 $Q=0.14$ の場合の平均  
運動 $y_o, y_x$ , 分散 $\sigma_o$   
の時間変化。  
実線は図2と同様に  
(1)式とスケーリング  
理論より得られる $\sigma_o$   
の変化を示す。



部雑音を加えると、図3(a)に示すように分散値は約4倍と増加したが、 $t_m$ については顕著な変化は見られなかった。これは、液晶ではとと外部雑音強度に応じて、multiplicative stochastic process と additive noise process との領域があり、 $Q=0.14$  では、multiplicative stochastic process と additive noise process の中間あたりにあるためと思われる。図3(b)に $\sigma_x$ と $\sigma_0$ を示した。図2と定性的に大きな違いは見られないが、外部雑音が存在すると、 $\sigma_x$ の一定の領域は広くなり、 $\sigma_x$ はゆるやかに変化するようにになる。これに相応するようにスケーリング理論は $\sigma_0$ に対して、より広い領域で一致が良くなっている。このことは外部雑音の印加により、巨視秩序形成を遅らせていることを意味するが、そうすると $Q=0.14$ では多少MSP<sup>\*</sup>となっているといえる。 \* multiplicative stochastic process

### §3. most probable pathのまわりの揺動の分布

図4に平均値のまわりの分布を示す。外部雑音のない場合には、分布は図4(a)に示すように、初期  $t=109\text{msec}$  ( $\tau=t/t_m=0.484$ ) ではガウス分布となっているが、 $t$ が $t_m$ に近づくとともにガウス分布から外れてくる(図4(b))。そして最終的には、多分散の結晶成長でみられる拡散律速過程でのサイズ分布(LSW分布)に類似した分布となる(図4(c)-(d))。図中実線はその分布を示す。特に $t > t_m$ では、一般にLSW分布と適当にスケール変換することによって常に一致する。一方、外部雑音がない deterministic force に対して14%加えられた場合には、分布は初期  $t=109\text{msec}$  ( $\tau=0.77$ ) では対数正規分布あるいは、第2次の界面反応律速成長過程での粒子サイズ分布に類似した分布となる(図5(a))<sup>5)</sup>。一方、 $t_m$ 付近( $\tau=1.03$ )では、ほぼガウス分布( $\sigma_g=1.823$ )となり(図5(b))、最終的には定常分布はLSW型の分布となる(図5(c))。これらの事実から考えると、 $t < t_m$ の領域では、微視的不安定性から巨視的要素の発生する過程であり、 $t_m$ 付近では巨視的要素が十分発生し、微視的には定常に達している(例えば、過飽和溶液にたとえると、ほとんど核生成が終わ

図4.  $Q=0$  の場合の  
平均運動のまわ  
りの揺動の分布  
とその時間変化

(a).  $t=109\text{msec}$   
実線は Gaussian  
( $\sigma_g=0.0441$ )

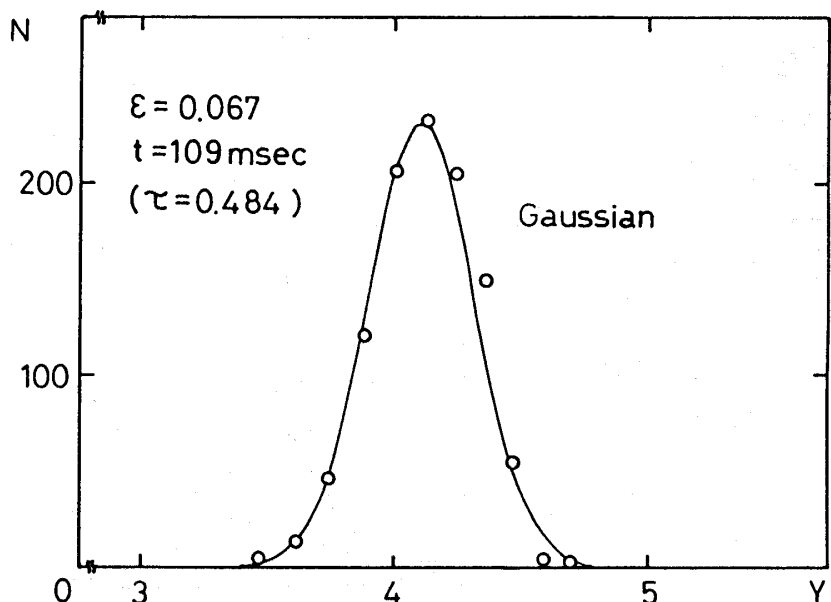


図 4 (b)

$t = 172 \text{ msec}$   
 $(\tau = 0.764)$ ,  
 $\sigma_q = 0.203$

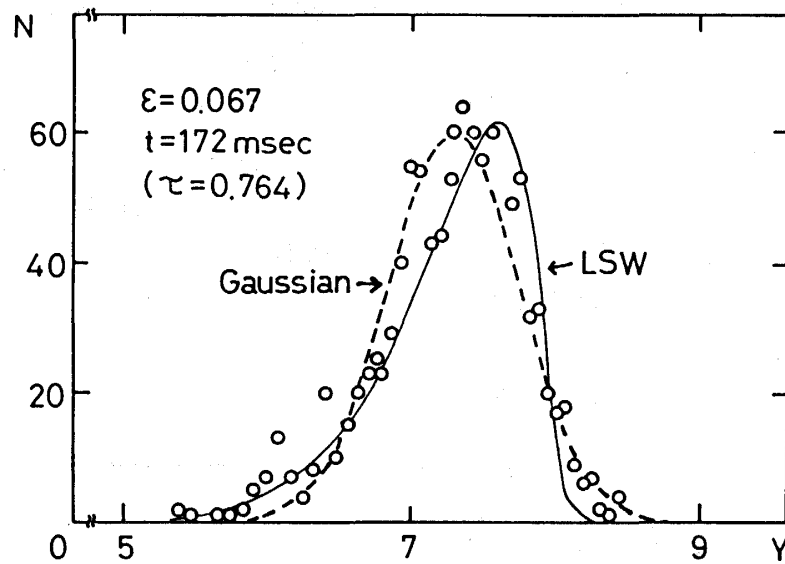


図 4 (c)

$t = 203 \text{ msec}$   
 $(\tau = 0.902)$ ,  
 $\sigma_q = 0.25$

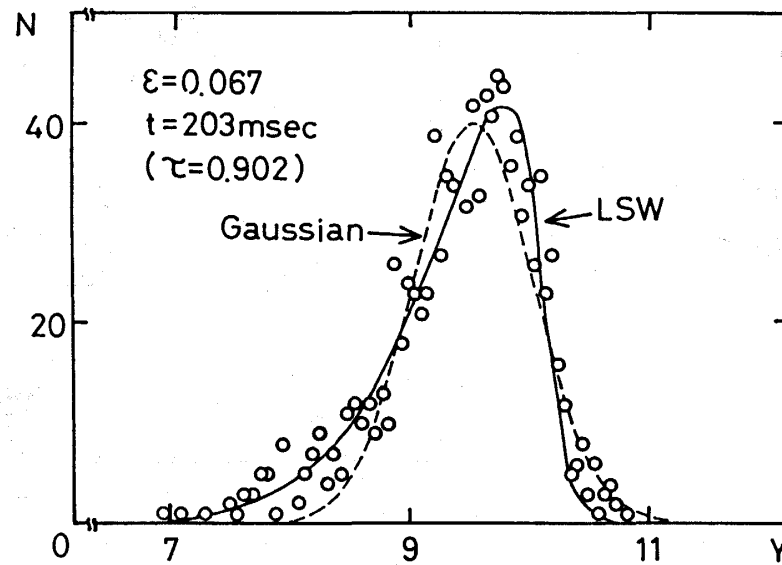
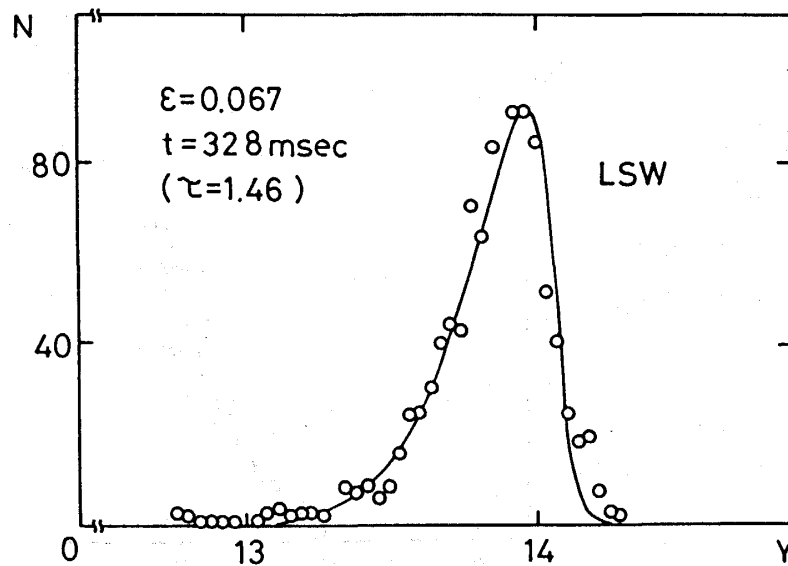


図 4 (d)

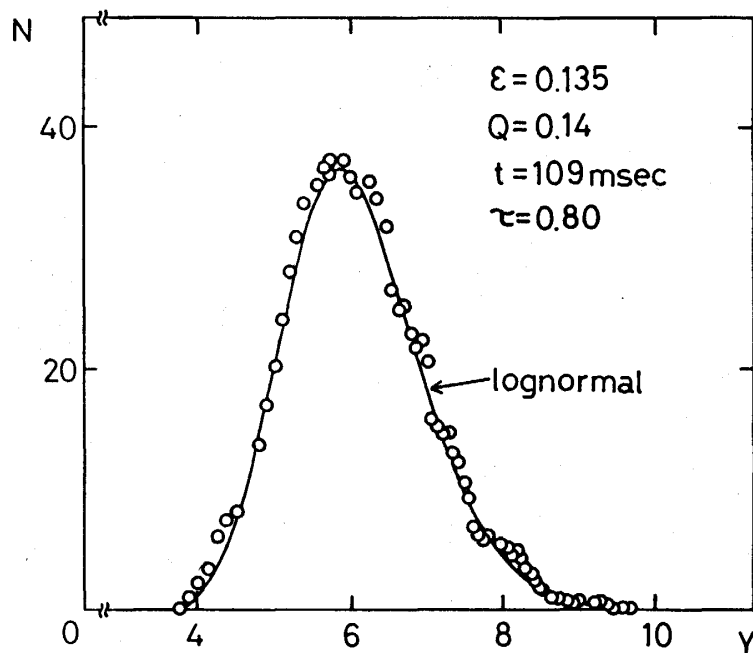
$t = 328 \text{ msec}$   
 $(\tau = 1.46)$



り、過飽和度に近い)が、巨視的要素(秩序)の間の安定性(例えば、生成後の間の安定性)はまだであり、巨視的モード間の相互作用が $t_m$ から始まるものと考えられる。すなわち、 $t > t_m$ では、過飽和溶液のオストワルド成熟期、あるいはスピノダル後期のような領域に入るものと推測される。したがってこの領域では、以前の報告でも述べたように、空間的な不均一構造間のモード選択の領域にあたり、終領域の間でそれが終わるのではないと思われる。長距離の巨視秩序間の相互作用が支配的になるという、この考えが正しいならば、拡散律速に従うLSW分布がよく一致することも、あながち奇妙とは思えない。また、外部雑音を印加すると、初期に対数正規分布型分布となることは、直接揺動間の反応動力学が成長を支配している、かつ、そこにカスケードプロセスのような機構を含んで

図5.  $Q=0.14$  の場合の揺動の分布

(a)  $t=109\text{msec}$   
(実線は対数正規分布)



(b)  $t=141\text{msec}$   
( $\tau=1.03$ )  
(実線はGaussian分布,  $\sigma_g=1.823$ )

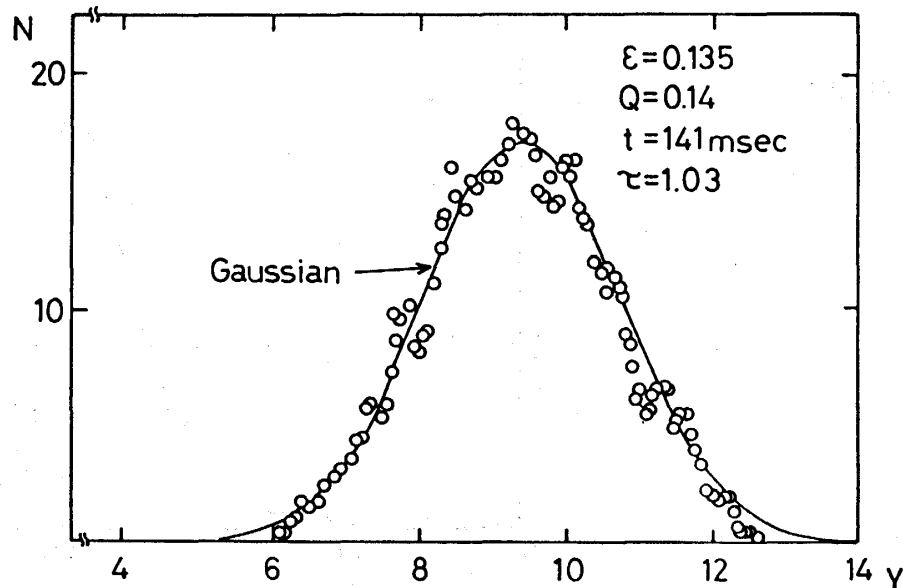
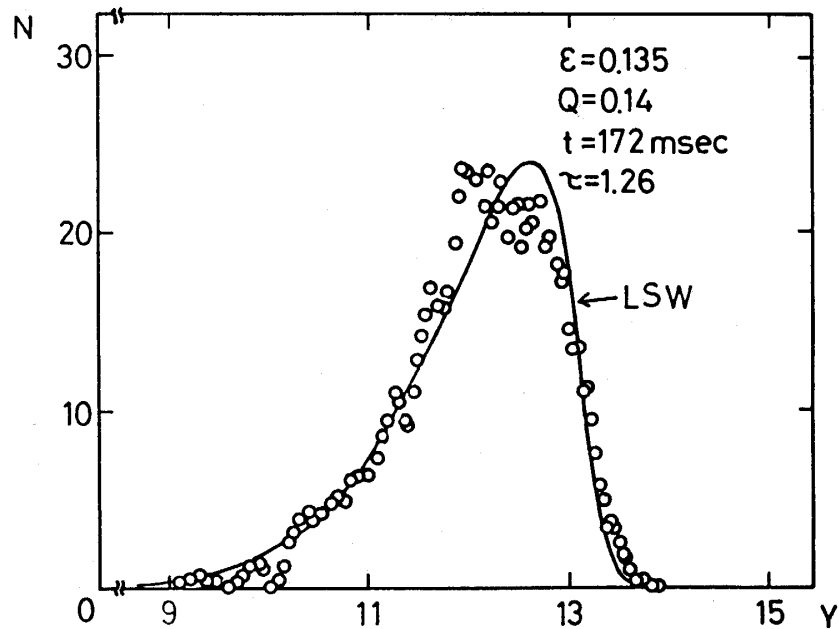


図5(c)

$t = 172 \text{ msec}$   
 $(\tau = 1.26)$



いることを示す。さらに、始めから雑音が印加されているということは、初期に揺動密度が高く、揺動の拡散は必要なく、したがってその反応速度のみによって成長が支配されていることになる。しかし、終期にはすべて成長に喰われて、必要とする巨視要素の揺動の密度は薄くなり、拡散律速-LSW型へと移っていく。このように考えると、分布の時間変化に対する説明は双方とも矛盾なくつながっているように思える。

#### §4. おわりに

本稿では、特に分布の移り変わりを多分散の結晶成長との類似性から議論したが、物理的に妥当か否か不明である。しかし、核生成やスピノダル分解のような現象は、本来微視的なTDGL型方程式の不安定性から発生し、安定相（例えばドロップレット）の発生の後にこれらの安定相間の長距離相関が重要となる終領域となり、ここではダイナミクスの性質が異なってくる。この点から本現象との強い相似性があるように思える。ともかく、実験結果からは、分散が最大になる時間( $t_m$ )を境にして、 $t > t_m$ の終領域と大きく $t_m$ の初領域とは系内のダイナミクス、揺動の性質が質的に異なることはまちがいないといえる。このような分布関数の時間変化が、直接的あるいは(2)式の確率微分方程式の解から導かれるか、あるいは上記のように新しいマクロダイナミクスが必要であるのかについては、今後の問題である。

#### 参考文献

- 1) 例えば直流では, N. Hijiuro, Prog. Theor. Phys. **54** (1975) 592
- 2) A. Schenzle and H. Brand, Phys. Rev. **A20** (1979) 1628
- 3) 甲斐昌一・平川一美, 物性研究 **41** (1983) 514



甲斐昌一

- 4) M. Suzuki, Prog. Theor. Phys. 56 (1976) 77, ibid 56 (1976) 477, ibid 57 (1977) 380.
- 5) M. Kahlweit, Ad: Colloid Inter. Sci. 5 (1975) 1.